

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-139566  
 (43)Date of publication of application : 13. 06. 1991

(51)Int. CI. C08L 83/12  
 C08K 3/00  
 C08L 71/02  
 H01B 1/12  
 H01M 6/18  
 H01M 10/40

(21)Application number : 01-277835 (71)Applicant : TORAY DOW CORNING SILICONE CO LTD  
 (22)Date of filing : 25. 10. 1989 (72)Inventor : NAKAMURA TAKASHI

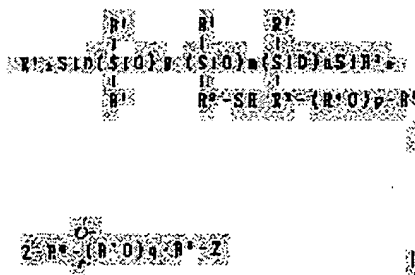
## (54) ION-CONDUCTIVE MATERIAL AND ITS PREPARATION

### (57)Abstract:

PURPOSE: To prepare an ion-conductive material improved in the ionic conductivity and suitable for the use as a solid electrolyte of an electronic device by dispersing a metal ion of the group I or II of the periodic table in a specific crosslinked copolymer.

CONSTITUTION: An organopolysiloxane of formula I (wherein R1 is a monovalent org. group; R2 is an alkylene or arylene group; R3 is a divalent org. group; R4 is an alkylene group; R5 is R1; (l) is 0-1000; (m) is 2-1000; (n) is 1-1000; and (p) is 1-100), a polyoxyalkylene of formula II (wherein Z is an aliph. unsatd. hydrocarbon group; R6 is a divalent hydrocarbon group; R7 is an alkylene group; and (q) is 1-100), and a metal ion of the group I or II of the periodic table are

compounded. The resulting compsn. is irradiated with ultraviolet rays to conduct the crosslinking reaction between the organopolysiloxane and the polyoxyalkylene, thus producing an ion-conductive material wherein the metal ions are dispersed in the crosslinked copolymer of the organopolysiloxane and the polyoxyalkylene.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application]

other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998, 2003 Japan Patent Office

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

## ⑫ 公開特許公報(A) 平3-139566

⑬ Int.Cl.<sup>5</sup> 識別記号 庁内整理番号 ⑭ 公開 平成3年(1991)6月13日  
 C 08 L 83/12 L R Y 6609-4 J  
 C 08 K 3/00 L R X 7167-4 J  
 C 08 L 71/02  
 H 01 B 1/12 Z 7244-5 G  
 H 01 M 6/18 E 8222-5 H  
 10/40 A 8939-5 H

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全8頁)

⑮ 発明の名称 イオン導電性材料およびその製造方法

⑯ 特 願 平1-277835

⑰ 出 願 平1(1989)10月25日

⑱ 発 明 者 中 村 隆 司 千葉県市原市有秋台西1丁目6番地  
 ⑲ 出 願 人 東レ・ダウコーニン 東京都中央区日本橋室町2丁目3番16号  
 グ・シリコーン株式会  
 社

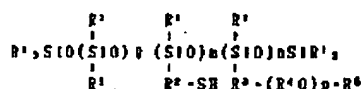
## 明 細 書

## 1. 発明の名称

イオン導電性材料およびその製造方法

## 2. 特許請求の範囲

## 1 (A)一般式



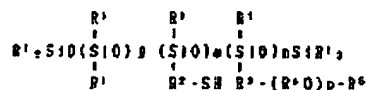
(式中、 $R^1$ は1価の有機基、 $R^2$ はアルキレン基もしくはまたはアリーレン基、 $R^3$ は2価の有機基、 $R^4$ はアルキレン基、 $R^5$ は1価の有機基、 $p$ は0~1000の整数、 $m$ は2~1000の整数、 $n$ は1~1000の整数、 $p$ は1~100の整数である。)

で示されるオルガノポリシロキサンと(B)一般式  $Z-R^6-(R^7O)_q-R^8-Z$  (式中、 $Z$ は脂肪族不飽和炭化水素基、 $R^6$ は2価の炭化水素基、 $R^7$ はアルキレン基、 $q$ は1~100の整数である。)で示されるポリオキシアルキレンとを反応させてなる共重合体架橋物と、(C)同組成物I族

または第II族の金属イオンからなり、該金属イオンが前記共重合体架橋物中に分散していることを特徴とするイオン導電性材料。

2 (B)成分のポリオキシアルキレン一般式  $Q-R^6-(R^7O)_q-R^8$  (式中、 $Q$ は脂肪族不飽和炭化水素基、 $R^6$ は2価の炭化水素基、 $R^7$ はアルキレン基、 $R^8$ は1価の有機基、 $q$ は1~100の整数である。)で示される分子鎖片末端に脂肪族不飽和炭化水素基を有するポリオキシアルキレンを含むものである、特許請求の範囲第1項記載のイオン導電性材料。

## 3 (A)一般式



(式中、 $R^1$ は1価の有機基、 $R^2$ はアルキレン基もしくはまたはアリーレン基、 $R^3$ は2価の有機基、 $R^4$ はアルキレン基、 $R^5$ は1価の有機基、 $p$ は0~1000の整数、 $m$ は2~1000の整数、

## 特開平3-139566 (2)

nは1~1000の整数、pは1~100の整数である。)で示されるオルガノポリシロキサンと(B)一般式  $2-R^0-\overset{O}{\underset{A}{C}}-R^0-2$  (式中、Zは脂肪族不飽和炭化水素基、R<sup>0</sup>は2価炭化水素基、R<sup>1</sup>はアルキレン基、qは1~100の整数である。)で示されるポリオキシアルキレンと(C)周期律表第I族または第II族の金属塩からなる混合物に紫外線を照射して、前記(A)成分と(B)成分とを架橋反応せしめることを特徴とする、イオン導電性材料の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔産業上の利用分野〕

本発明はイオン導電性材料およびその製造方法に関する。

〔従来の技術および発明が解決しようとする課題〕

近年、電池、表示素子(ECD等)等の電子デバイスは、高性能化、小型化、薄型化が一般と進んでいる。それに伴いそれらに用いられるイオン導電性材料も高性能化はもちろんのこと、

材料もあるが、この材料にしても漏液の問題を完全に払拭できるものではなかった。また、(2)の固体電解質材料は本質的に高信頼性の長寿命な電子デバイスに適用でき、かつ、小型、薄型化の要求に応じうる材料である。しかし、現状では室温で十分に導電性のある材料は得られておらず、広く実用化されるまでに至っていない。また、(3)の固体電解質材料は本質的に(2)と同様、漏液という問題が解決されるばかりか、有機高分子特有の高柔軟性、高成形加工性といった優れた特性の付与が期待できるので、前述の電子デバイスの広範な要求に応じうる材料として注目を浴びている。かかる固体電解質材料に用いられる高分子のイオン導電性材料に要求される特性としては、イ)含有させる電解質(金属塩)の溶解量が多分に入ること、かつ、イオンに解離させる能力が大きいこと。ロ)解離したイオンが高分子マトリックス中を移動し易いこと等があげられる。以上の条件を

固体化、高信頼性、高柔軟性、高成形加工性、耐湿性等種々の高直な要求がなされている。

従来、このようなイオン導電性材料としては、(1)電解質を水、水性溶剤または有機溶剤に溶解した電解質溶液;

(2)ベーク・アルミナ( $\beta$ - $Al_2O_3$ )、窒化リチウム( $Li_3N$ )、ヨウ化リチウム・アルミナ( $LiI-Al_2O_3$ )、ヨウ化鉛ルビジウム等の無機質からなる固体電解質材料;

(3)高分子樹脂マトリックスに周期律表第I族または第II族金属の塩を溶解、分散させた固体電解質材料;

等が知られている。

しかし、(1)の電解質溶液は、材料に水または有機溶剤等の液体を用いているため、電子デバイス外部への漏液という問題が常に存在し、この漏液によりデバイスの性能劣化や周辺部品の損傷を引き起こす場合がある。この欠点を改善するために、電解質溶液中に高分子化合物を混合して糊状あるいはゲル状にしたイオン導電性

満たす高分子構造としてはPEO(ポリエチレンオキシド)等のポリエーテルセグメントを含む架橋体が比較的よい導電性を示すため、種々検討がなされている。しかし、PEOの単体を架橋しただけでは分子運動性に限界があり、室温で十分な導電率が得られていない。そこで、この欠点を改良するために、分子運動性の極めて高いシロキサンセグメントとPEOセグメントとを組み合わせた固体電解質の合成が試みられている。例えば、特開昭60-216463号広報、特開昭60-217261号広報および特開昭61-142061号広報にはSi-O-C結合により結合されたシロキサンとPEOとの共重合体の架橋物にリチウムイオン等を分散させてイオン導電性材料としたものが記されている。しかし、Si-O-C結合は水の存在により容易に切断されるため、材料としての取扱が極めて不便である。また、ソリッドステートアイオニクス(Solid State Ionics) .15, 233(1985)等にはポリエチレングリコールを側鎖に有するポリシロキサンを2価性イオンシ

## 特開平3-139566 (9)

アノートにより架橋固化させ、金属イオンを分散させてイオン導電性材料としたものが開示されている。しかし、この場合、十分な強度を出すまで固化させるにはNCO基の量をOH基に対して十分に過剰に加えなければならないが、残存NCO基は電池等のデバイスに組み込んだ場合、電極材と反応を起こす恐れがあり、実用化には問題があった。さらに、特開昭 62-203169号広報にはシロキサンとPEOとの架橋物の製造方法として白金触媒によるヒドロシリル化反応や放射線（電子線等）の照射による架橋方法を挙げ、これらに、金属イオンを分散させて、イオン導電性材料としたものが開示されている。しかし、これらの方法の場合、まず、白金触媒を用いる場合は、系内に白金が残留することになり、得られた固体電解質は着色を呈するので、表示素子には適さないばかりか、リチウムイオン等のキャリアイオンの移動度を低下させる恐れがあった。また、放射線による架橋方法は以上のような欠点は除去できるが、設備に莫大な

費用がかかるため、実用化には至っていない。

また特開昭 62-203169号広報等に開示されたイオン導電性材料の製造方法は、2種以上の原料を相溶させるために有機溶剤を用いる必要があった。有機溶剤の使用は一部の製品には適用できないばかりか工程の煩雑化を招き、また作業環境の悪化、廃材材料の煩悩、最終生成物への溶剤の残留等を起こす恐れがあった。また溶剤により原料が相溶できても、溶剤が蒸発する過程などで相分離を起こす等により架橋反応の完結性が完全には保証されず、結局製品の品質の低下、再現性のなさ等に結び付くため実用化には問題があった。

このように、現在まで開示されたポリシロキサンと他の高分子材料の架橋物からなる固体電解質は、いずれも特性あるいは製造方法に欠点を有しており、前述の電子デバイスへの応用としては満足すべきものではなかった。

本発明者らはかかる問題を解決すべく鋭意検討した結果、特定の共重合体架橋物中に特定

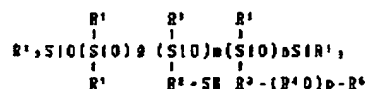
の金属イオンを分散させてなる材料が、上記のような欠点がなくイオン導電性に優れ、またその製造方法が上記のような欠点を払拭できることを見出し本発明に到達した。

本発明の目的は電池、表示素子等の電子デバイスの固体電解質として好適に運用可能なイオン導電性材料およびその製造方法を提供することにある。

## [課題の解決手段とその作用]

かかる本発明は、

## (A)一般式



(式中、R<sup>1</sup>は1価の有機基、R<sup>2</sup>はアルキレン基もしくはアリーレン基、R<sup>3</sup>は2価の有機基、R<sup>4</sup>はアルキレン基、R<sup>5</sup>は1価の有機基、qは0~1000の整数、mは2~1000の整数、nは1~1000の整数、pは1~100の整数である。)で示

されるオルガノポリシロキサンと(B)一般式

$2-R^1-\overset{O}{\underset{|}{A}}(R^1O)_q-R^2 \cdot 2$  (式中、Zは脂肪族不飽和炭化水素基、R<sup>2</sup>は2価の炭化水素基、R<sup>1</sup>はアルキレン基、qは1~100の整数である。)で示されるポリオキシアルキレンとを反応させてなる共重合体架橋物と、(C)四配位第I族または第II族の金属イオンからなり、該金属イオンが前記共重合体架橋物中に分散していることを特徴とするイオン導電性材料に関する。

これについて説明するに、(A)成分のオルガノポリシロキサンは、本発明のイオン導電性材料の共重合体架橋物を構成する主剤となるものであって、該共重合体架橋物を形成するためには1分子中に2個以上のメルカプト基含有炭化水素基を有することが必要であり、また、優れたイオン導電性を示すためにはオキシアルキレン基を有することが必要である。

かかるオルガノポリシロキサンは上式中、R<sup>1</sup>は、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等

## 特開平3-139566 (4)

のアリール基、ベンジル基、フェニル基等のアリール基で例示される1価の有機基であり、これら R<sup>1</sup>は経済性および良好な共重合体架橋物の形成性の観点からはその半数以上がメチル基であることが好ましい。R<sup>2</sup>はメチレン基、エチレン基、プロピレン基等のアルキレン基もしくはフェニレン基、トリレン基、キシリレン基等のアリーレン基である。R<sup>3</sup>は式 R<sup>4</sup>-S- (式中、R<sup>4</sup>は前記と同じ)、前記のようなアルキレン基、アリーレン基等で例示される2価の有機基である。R<sup>4</sup>はメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基等のアルキレン基である。R<sup>5</sup>はメチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、アセチル基またはプロピオニル基等のアシル基で例示される1価の有機基である。sは0~1000の範囲内、mは2~1000の範囲内、nは1~1000の範囲内であり、これらは特に限定されないが、(A)成分と(B)成分が相違するためには(s+m)とnの比率は(1/5)~(

5/1)の範囲内が好ましい。また、製造の容易さ、共重合体架橋物としての適度の硬さを得るためには、(s+m)とnの比率は0.01~100の範囲内であり、(s+m+n)は10~100の範囲内が好ましい。

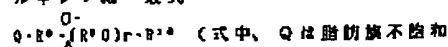
かかる共重合体の合成方法としては種々の方法があるが、その1つの方法としては側鎖にメルカプトアルキル基を有するジオルガノポリシロキサンと、片末端に不飽和炭化水素基を有し他末端に非反応性の有機基を有するポリオキシアリレンとを、不飽和炭化水素基のモル数がメルカプト基のモル数よりも下回る比率で付加させる方法が挙げられる。この付加反応は光照射またはラジカル開始剤の存在下で溶液内で容易に行える。

(B)成分のポリオキシアリレンは、上記(A)成分の架橋剤であり、架橋剤としての働きをするためには、1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を含有することが必要である。また、(B)成分は共重合体架橋物中に

PEO単位を導入し、高イオン導電性を発現する役割を果たす。

かかるポリオキシアリレンは上式中、Zはビニル基、アリル基、プロペニル基等の脂肪族不飽和炭化水素基である。R<sup>6</sup>はメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基等のアルキレン基あるいはフェニルプロピレン基、プロピルフェニレン基等のアリール基とアルキレン基またはアルキル基とアリーレン基の連鎖基等の2価の炭化水素基である。R<sup>7</sup>はメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基等のアルキレン基である。qは1~100の範囲内であり、5~20の範囲内が好ましい。

(B)成分は上記のような1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を含有するポリオキシアリレンであるが、このポリオキシアリレンは一般式



炭化水素基、R<sup>9</sup>は2価の炭化水素基、R<sup>10</sup>はアルキレン基、R<sup>11</sup>は1価の有機基、rは1~100の整数である。)で示される分子鎖片末端のみに脂肪族不飽和炭化水素基を有するポリオキシアリレンを含有するものを使用してもよい。この一般式で示される分子鎖片末端のみに脂肪族不飽和炭化水素基を有するポリオキシアリレンは上記(A)成分のメルカプト基に付加反応し、共重合体架橋物中にポリオキシアリレンのグラフト鎖を形成させる働きをする。本発明においては、かかるグラフト鎖が若干存在した方がイオン導電性が向上する傾向にあるので、より高いイオン導電性が要求される場合は、(B)成分としてこの種のポリオキシアリレンを含有することが好ましい。かかる分子鎖片末端のみに脂肪族不飽和炭化水素基を有するポリオキシアリレンは上式中、QはZと同様な脂肪族不飽和炭化水素基、R<sup>8</sup>はR<sup>6</sup>と同様な2価の炭化水素基、R<sup>9</sup>はR<sup>7</sup>と同様なアルキレン基、R<sup>10</sup>はメチル基、エチル基、プロピル基等のア



## 特開平3-139566(5)

ルキル基；フェニル基、ナフチル基等のアリール基；アセチル基またはプロピオニル基等のアシル基である。

本発明のイオン導電性材料は、上記のような(A)成分と(B)成分とを反応させてなる共重合体架橋物と(C)周期律表第Ⅰ族または第Ⅱ族の金属イオンからなるものであるが、この共重合体架橋物は、主に(A)成分中のメルカプト基と(B)成分中の脂肪族不飽和炭化水素基との付加反応によって形成されるものであって、その反応手段としてはメルカプト基と脂肪族不飽和炭化水素基との付加反応に用いられている従来公知の反応手段、例えば、電子線、γ線、紫外線等のエネルギー線を照射する反応手段が利用される。

(C)成分はイオン導電性付与剤であり、これは、周期律表第Ⅰ族または第Ⅱ族に属するものであればよく特に限定されない。かかる金属イオンとしてはリチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム等の金属イオンが例

示される。これらの中でも単位体積あるいは単位重量当りのエネルギー密度を大きくするためにはリチウムイオンが好ましい。また、本発明のイオン導電性材料を電池などに適用する場合は、用いられる電極材と同等のイオン（例えば、電極材がリチウムの場合はリチウムイオン）を選択することが好ましい。

かかる(C)成分は、通常、金属塩の形態で用いられる。金属塩の種類としては、いずれでもよいが、イオン導電性を高めるためには過塩素酸リチウム(LiClO<sub>4</sub>)、六フッ化リチウム(LiPF<sub>6</sub>)、リンフッ化リチウム(LiPF<sub>6</sub>)、三フッ化メタンスルホン酸リチウム(LiCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>)、ヨウ化リチウム(LiI)等が好ましい。

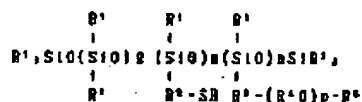
また、その分散量は共重合体架橋物中のオキソアルキレン基のモル数[R<sub>0</sub>]に対する塩のモル数[S]（例えば[LiClO<sub>4</sub>]等）比[S]/[R<sub>0</sub>]は0.005~0.25とすることが好ましく、より好ましくは0.01~0.05である。これは[S]/[R<sub>0</sub>]が0.25を越えると金属塩が均

一に分散し難くなり、また0.005未満になると高いイオン導電率が得難くなるからである。

本発明のイオン導電性材料は、一般のメルカプト基を有する化合物と脂肪族不飽和炭化水素基を有する化合物との付加反応に使用されている従来公知の技術手段および高分子物質中に金属塩を分散させる従来公知の技術手段を組み合わせてることによって容易に製造される。これらの一例を挙げれば、例えば、(A)成分と(B)成分の混合物に紫外線等のエネルギー線を照射し、(A)成分と(B)成分からなる共重合体架橋物を造り、これを有機溶剤に溶解させた後、(C)成分を混合し分散させる方法；(A)成分~(C)成分からなる混合物に紫外線等のエネルギー線を照射して(A)成分と(B)成分からなる共重合体架橋物を造ると同時に(C)成分を分散させる方法が挙げられるが、本発明のイオン導電性材料を製造するには、次のような製造方法が好ましい。

すなわち、

「(A)一般式



(式中、R<sup>1</sup>は1個の有機基、R<sup>2</sup>はアルキレン基もしくはまたはアリーレン基、R<sup>0</sup>は2個の有機基、R<sup>4</sup>はアルキレン基、R<sup>5</sup>は1個の有機基、nは0~1000の整数、mは2~1000の整数、pは1~1000の整数、pは1~100の整数である。)

で示されるオルガノシリロキサンと(B)一般式  $Z-R^3-\overset{O}{\underset{||}{C}}-(R^0)_q-R^3-Z$  (式中、Zは脂肪族不飽和炭化水素基、R<sup>0</sup>は2価炭化水素基、R<sup>3</sup>はアルキレン基、qは1~100の整数である。)で示されるポリオキソアルキレンと(C)周期律表第Ⅰ族または第Ⅱ族の金属塩からなる混合物に紫外線を照射して、前記(A)成分と(B)成分とを架橋反応せしめることを特徴とする、イオン導電性材料の製造方法。」である。

これについて説明するに、ここで使用される(A)成分と(B)成分は前記イオン導電性材料の

## 特開平3-139566 (6)

説明の項で詳述した(A)成分と(B)成分と同じである。

(B)成分の配合割合は(B)成分中の脂肪族不飽和炭化水素基のモル数と(A)成分中のメルカプト基のモル数の比が(1:5)~(10:1)の範囲内であり、(1:2)~(5:1)の範囲内が好ましく、(1.0:1.0)~(1.2:1.0)の範囲内が特に好ましい。これは(A)成分と(B)成分はいずれの比率でも付加反応が起こり、固体化した共重合体架橋物が得られるが、(A)成分中のメルカプト基のモル数が(B)成分中の脂肪族不飽和炭化水素基のモル数よりも多くなると、本発明の組成物中に未反応のメルカプト基が残存した状態となる傾向にある。このようにして得られたイオン導電性材料は、例えばこれを電池等に応用した場合、残存したメルカプト基と電極材との反応等の弊害が起こることが予想されるので、好ましくない。

(C)成分は前記イオン導電性材料の説明の項で詳述した(C)成分と同じであり、その配合量

せてもよい。かかる有機溶剤は特に限定されないが、例えば、ナトリウムジクロロフラン、ジオキサン、アセトニトリル、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドが挙げられる。

また、この反応は、通常は紫外線照射下での架橋反応を促進する作用効果を示す光増感剤の存在下で行われる。かかる光増感剤としては紫外線硬化型増感剤に通常用いられる公知のものでよく、これには、アセトフェノン、ベンゾフェノン、トリメチルシリルベンゾフェノン、プロピオフェノン、3-メチルアセトフェノン、4-メチルアセトフェノン、ベンゾインエタレエーテル、ジメチルホリシロキサンの両末端にベンゾインがエーテル結合した化合物、(4-イソプロピル)フェニル-1-ヒドロキシイソプロピルケトン、4-アリルアセトフェノン、3-ベンチルアセトフェノン、4-メトキシベンゾフェノン等の芳香族ケトン；トリフェニルアミン等のアミン化合物；アゾビスイソプロピロニトリル等のアゾ化合物が例示される。この光増感剤の使用量

は(A)成分と(B)成分との合計量 100重量部に対して0.5~20重量部である。これは0.5重量部未満になるとイオン導電性が低下し実用に供さなくなるからであり、一方、20重量部を超えると均一な混合物として得られないからである。

この方法においては(A)成分~(C)成分からなる混合物に紫外線を照射し、前記(A)成分と(B)成分とを架橋反応させるのであるが、この(A)成分と(B)成分の混合は複はん等の操作で容易に均一に混合できる。この混合は(C)成分を(A)成分または(B)成分に予め溶解させておき、(A)成分~(C)成分を混合するか(A)成分と(B)成分を混合させた後に(C)成分を添加混合してもよい。(C)成分のオキシアルキレン類への溶解は複はん等の操作でも可能だが、溶解時間短縮のためには加熱あるいは超音波照射等の操作が効果的である。

また、溶解工程において溶剤の使用が許容できる場合には、有機溶剤中で(A)成分~(C)成分を混合、溶解させ、しかる後に溶剤を蒸発さ

としては(A)成分のオルガノホリシロキサン100重量部に対し、0.001~20重量部の範囲内であり、好ましくは0.05~20重量部の範囲内である。反応温度は特に限定されないが、通常、室温ないし加熱下で行われる。紫外線の発生源としては、従来公知のものでよく、これには例えば水素放電管、キセノン放電管、低圧、中圧または高圧水銀灯等が挙げられる。紫外線の照射条件としては照射単独で本混合物が半硬化状態になる程度でよく、特に制限はない。溶剤を使用した場合は、紫外線照射後の時点では過熱、溶剤が硬化物に取り込まれた状態になっているので、これを減圧処理する等の方法で取り除く必要がある。

## 【実施例】

以下、実施例にて、本発明をより詳細に説明する。尚、イオン導電率の測定は次の方法により行った。

## ○イオン導電率の測定方法

イオン導電性材料をフィルム状に成形し、測

## 特開平3-139546 (7)

定用試料とした。この試料の厚さをマイクロメーターで測定した後、その両面に直径1cmの円形プレート状の白金電極を密着し、この全体を任意の温度に設定できる減圧容器の中に設置し、 $10^{-4}$ Torr以下の高真空まで減圧して試料の状態が十分に平衡に達した後、LCRメーター（検阿ヒューレットパッカード社製4192A）により5Hz～13MHzの交流電圧を印加し、交流インピーダンス法によりイオン導電率を測定した。

実施例1

下記に示される化合物(1)0.798g、化合物(2)0.204gおよび過塩素酸リチウム31.2mgとを攪はん混合し、超音波を照射して十分に溶解させた。この混合物に光増感剤として(4-イソプロピル)フェニル-1-ヒドロキシイソプロピルケトン（約20mgを加え均一に混合してイオン導電性組成物を得た。この組成物を、3cm四方のテフロン製の皿に流し込み、垂直上方より高圧水銀ランプからの1600/cmの紫外線を5cmの距離で8秒照射したところ、0.3mmの厚さの透明なフィ

射し0.3mmの厚さの透明なフィルムを成形し、イオン導電率を測定したところ、25℃で $5.0 \times 10^{-4} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ の値が得られた。

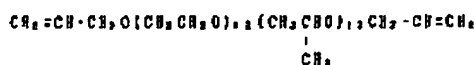
化合物(3):



実施例3

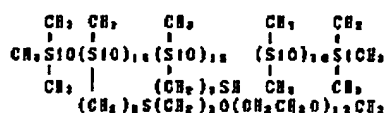
実施例1で使用した化合物(1)0.84%、下記に示される化合物(4)0.341gおよび過塩素酸リチウム33.9mgとを攪はん混合し、超音波を照射して十分に溶解せしめ、次いで光増感剤として(4-イソプロピル)フェニル-1-ヒドロキシイソプロピルケトンを約20mg加えイオン導電性組成物を得た。この組成物について、実施例1と同様にして紫外線を照射し0.3mmの厚さの透明なフィルムを成形し、このフィルムのイオン導電率を測定したところ、25℃で $2.7 \times 10^{-4} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ の値が得られた。

化合物(4):



ルムが得られた。さらにこれを70℃で2日間減圧乾燥させた後、このフィルムのイオン導電率を測定したところ、25℃で $4.8 \times 10^{-4} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ の値が得られた。

化合物(1):



化合物(2):



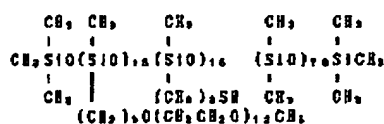
実施例2

実施例1で使用した化合物(1)0.798g、化合物(2)0.136g、下記に示される化合物(3)0.085gおよび過塩素酸リチウム31.2mgとを攪はん混合し、超音波を照射して十分に溶解せしめた。次いで、光増感剤として(4-イソプロピル)フェニル-1-ヒドロキシイソプロピルケトンを約20mg加えたイオン導電性組成物を得た。この組成物について実施例1と同様にして紫外線を照

実施例4

下記に示される化合物(5)0.798g、化合物(2)0.214gおよび過塩素酸リチウム32.7mgとを攪はん混合し、超音波を照射して十分に溶解させた。この混合物に光増感剤として(4-イソプロピル)フェニル-1-ヒドロキシイソプロピルケトンを約20mg加え均一に混合してイオン導電性組成物を得た。この組成物を、3cm四方のテフロン製の皿に流し込み、垂直上方より高圧水銀ランプからの1600/cmの紫外線を5cmの距離で8秒照射したところ、0.3mmの厚さの透明なフィルムが得られた。さらにこれを70℃で2日間減圧乾燥させた後、このフィルムのイオン導電率を測定したところ、25℃で $4.6 \times 10^{-4} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ の値が得られた。

化合物(5):



特開平3-139566 (8)

化合物(2):



【発明の効果】

本発明のイオン導電性材料は、(A)成分と(B)成分とからなる特定の共重合体架橋物中に(C)成分の金属イオンが分散しているので室温で高いイオン導電率を示し、これを電子デバイス等へ適用した際には放電れ、副作用等の弊害がない等の特徴を有する。従って高信頼性の製品が得られる他、無色透明のため幅広い用途が期待できる。また、その製造方法は、かかるイオン導電性材料を生産性よく製造し得るという特徴を有する。

特許出願人 トーレ・シリコン株式会社